

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problems Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: 2000121594 A

(43) Date of publication of application: 28 . 04 . 00

(51) Int. Cl

G01N 27/327

(21) Application number: 10314027

(22) Date of filing: 15 . 10 . 98

(71) Applicant: KDK CORP

(72) Inventor:  
 HAMAMOTO KATSUMI  
 MATSUOKA SHIRO  
 NODA YUICHIRO  
 NODA NORIMASA  
 KATSUKI KOJI

## (54) BIOSENSOR

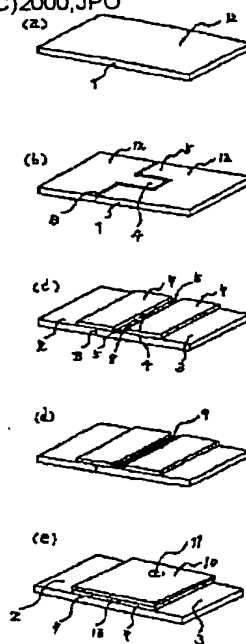
## (57) Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To enhance the accuracy especially of an electrode area and to improve scattering in measuring performance, in a biosensor which uses a liquid sample in a trace amount and by which a specific component in the sample can be measured quickly, with high accuracy and simply.

**SOLUTION:** A conductive carbon paste is applied to or spray-painted, and a metal is sputtered or vapor-deposited or a carbon cloth or a metal foil is bonded on an insulating substrate. Thereby, an electrode film 12 is formed on the insulating substrate 1. A groove 13 is formed on it with a knife or the like, and the film is divided. A spacer plate 7 is arranged so that a measuring electrode 4 and a counter electrode 5 to which a liquid sample is applied as well as a terminal part 2 and a terminal part 3 which are used to apply a voltage across both electrodes are formed on the divided electrode film 12. A reagent layer 9 is carried on the measuring electrode 4 and the counter electrode 5. Thereby, an ink blur, a liquid drip or the like as the fault of a 1/2 rinting system is eliminated, the accuracy of an electrode is enhanced, and scattering in

measuring performance is improved.

COPYRIGHT: (C)2000,JPO



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-121594

(P2000-121594A)

(43) 公開日 平成12年4月28日 (2000. 4. 28)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

G 0 1 N 27/327

識別記号

F I

G 0 1 N 27/30

テマコード (参考)

3 5 3 R

3 5 3 F

3 5 3 Z

審査請求 未請求 請求項の数 2 F D (全 5 頁)

(21) 出願番号

特願平10-314027

(22) 出願日

平成10年10月15日 (1998. 10. 15)

(71) 出願人 000141897

株式会社京都第一科学

京都府京都市南区東九条西明田町57番地

(72) 発明者 浜本 勝美

京都府京都市南区東九条西明田町57 株式会社京都第一科学内

(72) 発明者 松岡 史朗

京都府京都市南区東九条西明田町57 株式会社京都第一科学内

(72) 発明者 野田 雄一郎

京都府京都市南区東九条西明田町57 株式会社京都第一科学内

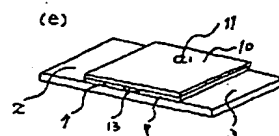
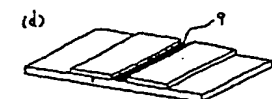
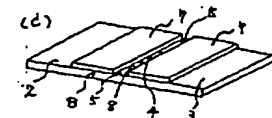
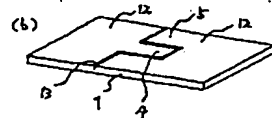
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 バイオセンサ

(57) 【要約】

【課題】 微量の液体試料を用いて、その試料中の特定成分を迅速、高精度、簡便に測定することができるバイオセンサに関し、特に電極面積の精度を向上して測定性能のばらつきを改善する。

【解決手段】 絶縁性基板 1 に、導電性カーボンペーストのコーティングやスプレー塗装、金属のスパッタリングや蒸着、あるいはカーボンクロスや金属箔を接着することによって、電極膜 12 を形成する。これを刃物等で溝 13 を形成して分割し、これら分割された電極膜 1, 2 に、液体試料が適用される測定極 4 および対極 5、並びにこれら両電極に電圧を印加するための端子部 2, 3 を形成するようにスペーサ板 7 を配置し、前記測定極 4 及び対極 5 上に試薬層 9 を担持する。印刷方式の欠点であるインクのにじみや液ダレ等がなくなり、電極面積の精度が向上して測定性能のばらつきが改善できる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】絶縁性基板の一表面全面に電極膜を形成し、該絶縁性基板の厚みの一部を残すように、刃物等で溝を形成して分割し、これら分割された電極膜に、液体試料が適用される測定極及び対極、並びにこれら両電極に電圧を印加するための端子部を形成するよう絶縁部を設け、前記測定極及び対極上に試薬層を担持したことを特徴とするバイオセンサ。

【請求項2】前記電極膜がカーボン、金、パラジウム、白金、銀からなることを特徴とする請求項1に記載のバイオセンサ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、食品分析、医療分析、環境分析等の分野において、微量の液体試料を用いて、その試料中の特定成分を迅速、高精度、簡便に測定することができるバイオセンサに関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来のバイオセンサとして、例えば特願平10-166894号に記載されたものが提案されている。これは図1の分解斜視図に示すように、絶縁性基板1上にスクリーン印刷により導電性カーボンペーストを印刷して、端子部2、3を有する平面視略凸形状の測定極4および略凹形状の対極5を膜状に形成している。次に、測定極4および対極5の接合部が縦方向に並ぶ帯状領域と、測定極4および対極5の各端子部領域2、3を残してレジスト層6（実線と一点鎖線で斜線を施した領域）を印刷形成する。続いて、上記レジスト層6に重ねるようにして、スペーサ7を配置し帯状の空間部8と測定極4及び対極5を形成している。血糖値測定用のセンサとして構成する場合、この空間部8に酵素としてグルコースオキシターゼやメディエータとしてフェリシアニ化カリウム等からなる試薬層9を担持している。そして上カバー10で覆うことによってキャピラリー構造とし、最後に貫通穴11を形成している。

【0003】測定時には、貫通穴11を介してスペーサ7で形成される帯状の空間部8、試薬層9に毛管現象によって体液（血液）が導入され、試薬層9が溶解して酸化還元反応が起こる。このとき測定極4と対極5に、端子部2、3を介して電圧を印加すると、グルコース濃度に依存した電流が得られ、血糖値が測定される。

【0004】また、特開平9-189675では、前記のような電極作製において絶縁性基板に蒸着やスパッタリングあるいは金属箔を接着することにより、金属膜を形成し、この表面にレーザー光線を照射して金属膜にスリット加工を行い、測定極と対極、および端子部を分割している。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら特願平10-166894号に記載のバイオセンサにおいては、

電極をスクリーン印刷にて形成しているため、スクリーン刷版のメッシュサイズの大小と導電性カーボンペーストやレジストインクの粘性の関係から印刷面に液ダレやにじみが生じ、測定極の面積がばらついて測定性能が悪くなるという問題がある。このためスクリーン印刷に代わり、作製が簡単で精度の良いバイオセンサの開発が望まれていた。

【0006】一方、特開平9-189675に記載の金属膜表面をレーザー加工で分割する方法は、測定極の面積のばらつきを抑制する上で優れた方法である。しかし、融点の低い金属の電極材料では容易にレーザーによってスリットを形成できるが、導電性カーボンペーストをポリエチレンテフタレートやポリスチレン等の樹脂製基板にコートした電極膜の場合、これらの樹脂製基板は耐熱性が悪くレーザー加工に不向きである。さらに、ペースト化剤としてエポキシ樹脂やアクリル樹脂のバインダーが多量に添加されているため、レーザー加工法でスリットを形成することは不可能である。

【0007】また、レーザーで複雑な線加工を形成する場合には、特別なX-Y駆動機構が必要で、自動生産ラインの設備投資は多額になり、その償却も含めてバイオセンサの価格は高くなると共に、大量生産にも限界がある。このため、電極膜に導電性カーボンペーストを用いても、作製が簡単で測定極の面積がばらつかないバイオセンサの開発が望まれていた。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】これらの課題を解決するために本発明のバイオセンサは、絶縁性基板の一表面全面に電極膜を形成し、該絶縁性基板の厚みの一部を残すように、刃物等で溝を形成して分割し、これら分割された電極膜に、液体試料が適用される測定極及び対極、並びにこれら両電極に電圧を印加するための端子部を形成するよう絶縁部を設けたものである。これにより導電性カーボンペーストや金属を電極膜として用いた場合でも、加工が容易で電極の面積がばらつくことのないバイオセンサを実現することを目的とする。

## 【0009】

【発明の実施の形態】本発明の請求項1に記載の発明は、絶縁性基板の一表面全面に電極膜を形成し、該絶縁性基板の厚みの一部を残すように、刃物等で溝を形成して分割し、これら分割された電極膜に、液体試料が適用される測定極及び対極、並びにこれら両電極に電圧を印加するための端子部を形成するよう絶縁部を設け、前記測定極及び対極上をカバーで覆うことによって形成されたキャピラリー内部に試薬層を担持したものである。これにより従来のように測定極や対極が、スクリーン刷版のメッシュサイズの大小と導電性ペーストやレジストインクの粘性による液ダレやにじみ等から起きる面積のばらつきは発生しなくなり、測定精度の向上が図られる。

【0010】また、この溝を形成するための刃物は、直

線的な溝を得る場合には一般的な裁断機用のカッターが使用でき、大きな曲線の溝の場合にはトムソン刃が用いられる。小さく特殊な形状を必要とする場合には金属加工により刃の金型を作製する。これにより、直線だけでなく屈曲した電極形状や円盤形状の電極も容易に、かつ安価に作製できる。また、溝の切り口部は鋭くカットでき、ため電極面積のばらつきは極めて小さくなる。

【0011】本発明の請求項2に記載の発明は、前記電極膜がカーボン、金、パラジウム、白金、銀からなることを特徴とする請求項1に記載のバイオセンサであり、絶縁性基板へのカーボンペーストのコーティング法、スプレー塗装法等やカーボクロスの接着、及び金、パラジウム、白金、銀等のスパッタリング法、真空蒸着法等で形成した200~500Åの薄膜、あるいは金属箔を接着することによって形成できるため、材料費は安くつき、大量生産できる利点を有している。

#### 【0012】

【実施例】以下に、本発明の実施の形態について、図面を用いて説明する。なお従来の構成と実質的に同じものについては、同一符号を付して説明する。

【0013】《実施例1》図2は本実施形態のバイオセンサの斜視図を、その作製工程順に示している。図2

(a)において、1はポリエチレンテレフタレートからなる絶縁性の基板であり、12はその表面全面に形成した電極膜である。電極膜12は厚み200μmのポリエチレンテレフタレートのシートに導電性カーボンペーストを10μmの厚さでコーティング法によって塗工し、次に加熱処理して形成した。

【0014】図2(b)は基板1上の電極膜12に、略凸形状(または略凹形状)の溝13をX-Z駆動の裁断機によって形成し、測定極4と対極5の2つの領域に分割している。この溝13の形成方法は、裁断機のZ軸に略凸形状でV字断面を有する刃物の金型を取り付け、基板1は電極膜12が上になるようにX軸方向に移動するテーブルに設置する。次に、基板1が5mm/秒毎に移動して止まり、これに同期してZ軸の略凸形状でV字断面の刃物が基板1の厚み方向に対して約150μmの深さで裁断する条件に調整した。このようにして基板1に切断しない50μmの厚みを残すように、5mm間隔毎に略凸形状の溝13を電極膜12に形成して測定極4と対極5に分割し、両極の電気的絶縁性を確保した。

【0015】図2(c)は、この略凸形状に分割された電極膜12の上を横断するように2枚のスペーサ7を配置して液体試料が適用される空間部8に測定極4及び対極5、並びにこれら両電極に電圧を印加するための端子部2、3を形成している。

【0016】図2(d)は、測定極4及び対極5上の空間部8に試薬層9を形成したものであり、試薬層9は例えば血糖値センサの場合には、酵素としてグルコースオキシダーゼ、メディエータとしてフェリシアン化カリウ

ム等を担持する。

【0017】図2(e)は、スペーサ7を上カバー10で覆うことによって試薬層9をキャピラリー構造とし、さらに貫通穴11を形成している。

【0018】この様に構成したバイオセンサにおいて、その測定時には、貫通穴11を介してスペーサ7で形成される帯状の試薬層9に毛管現象によって体液(血液)が導入され、試薬層9が溶解して酸化還元反応が起こる。このとき測定極4と対極5に、端子部2、3を介して電圧を印加すると、グルコース濃度に依存した電流が得られ、血糖値が測定される。

【0019】《実施例2》図3は、本発明の他の実施形態の分解斜視図を示している。作製方法は、厚さ400μmのポリスチレンシートからなる基板1の一表面全面に真空蒸着により金を400~500Åの厚さでのせて電極膜12を形成した。以下実施例1と同様にして、L字状でV字断面を有する2本の刃物の金型を用いて、基板1の厚み方向に対して切断しない200μmを残すように、深さ200μm、幅50μmの溝13を電極膜12に形成して電気的絶縁部とした。そして、試薬層9を形成するための空間部8を有するスペーサ7を取り付けたバイオセンサを作製した。

【0020】この様に構成したバイオセンサにおいて、その測定時には、スペーサ7の空間部8を介して形成される試薬層9上に体液(血液)を点着することにより、試薬層9が溶解して酸化還元反応が起こる。このとき測定極4と対極5に、端子部2、3を介して電圧を印加すると、グルコース濃度に依存した電流が得られ、血糖値が測定される。

【0021】《実施例3》図4は本発明の他の変形実施例の分解斜視図を、図5は組立品の平面図を示している。実施例1と同様に、厚さ200μmのポリエチレンテレフタレートからなる基板1の一表面全面に導電性カーボンペーストを5μmの厚さでスプレー法によって塗装し、加熱処理して電極膜12を形成する。次に、外径36mm、内径10mmのドーナツ型円面とし、電極膜12に対して深さ150μm、幅50μmの溝13が直径28mmと直径20mmの2つの同心円、及び半径方向に等間隔で8本の溝13が形成できる2種類の刃物の金型を用いて、基板1の厚み方向に対して切断されない50μmの厚みを残すように裁断して溝13を形成し、電気的絶縁部とする。そして、試薬層9を形成するための空間部8を有する円盤のスペーサ7を介して、空気穴14を有する円盤のカバー10で覆ったバイオセンサを作製することも可能である。このようなバイオセンサにおいては、複数のセンサを放射状に配列しているため連続測定が可能になる。

#### 【0022】

【発明の効果】絶縁性の基板上に導電性カーボンペーストのコーティングやスプレー塗装、金属のスパッタリング

や蒸着、あるいはカーボンクロスや金属箔を接着して形成した電極材料の膜に、刃物等で溝を形成して測定極と対極を分割し、粘着テープやヒートシールからなる材料のスペーサで電極露出（活性）部分の面積を規制しているので、印刷方式の欠点であるインクのにじみや液ダレ等がなくなり、精密に電極面積を規定することができる。このため各センサごとに電極性能がばらつくことはなく、精度のよいセンサを生産することができる。また、実施例1のような端子部の幅が大きくとれる形状や、実施例2の屈曲した端子部の形状、さらに実施例3の円盤形状に複数の電極を有するセンサ等、刃物の形状を変えることで自由な構造の電極が容易に作製できる。

【0023】また、刃物による溝の形成は簡単なX-Z駆動の裁断機が好適に用いられ、高速度で動くため大量生産が可能である。さらに、この裁断機は製紙業界で広く使われている安価な設備であり、センサの製造コストが安くなる。

【図面の簡単な説明】

【図1】従来のバイオセンサを示す分解斜視図

【図2】本発明の一実施形態によるバイオセンサをその

作製工程順に示す斜視図

【図3】本発明の他の実施形態によるバイオセンサを示す分解斜視図

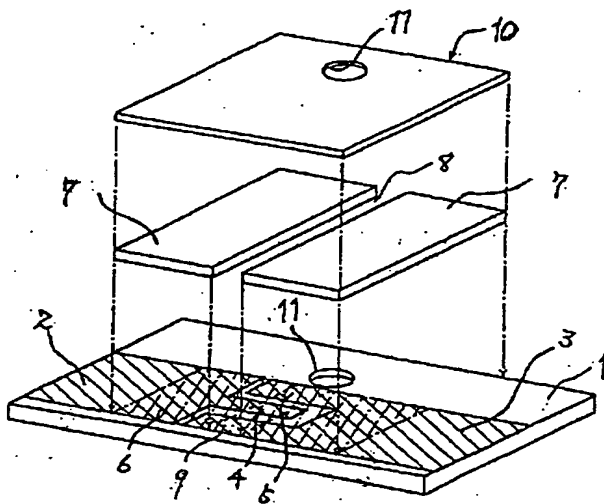
【図4】本発明の他の変形実施例によるバイオセンサを示す分解斜視図

【図5】図4に示した組立品の平面図

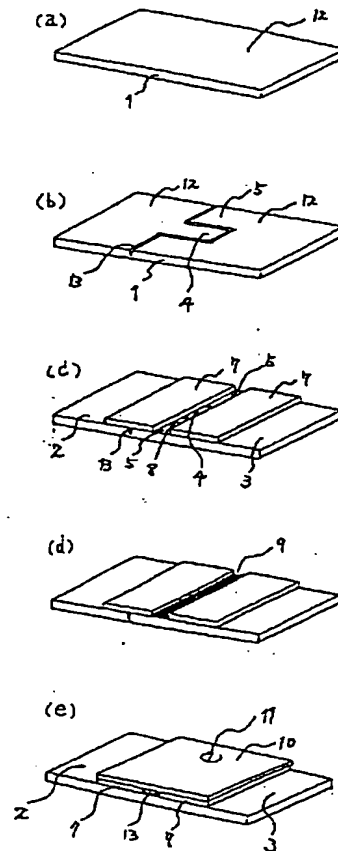
【符号の説明】

- |      |       |
|------|-------|
| 1    | 絶縁性基板 |
| 2及び3 | 端子部   |
| 4    | 測定極   |
| 5    | 対極    |
| 6    | レジスト層 |
| 7    | スペーサ  |
| 8    | 空間部   |
| 9    | 試薬層   |
| 10   | 上カバー  |
| 11   | 貫通穴   |
| 12   | 電極膜   |
| 13   | 溝     |
| 14   | 空気穴   |

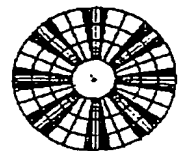
【図1】



【図2】

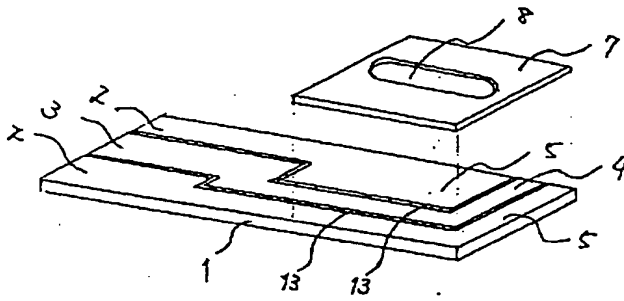


【図5】

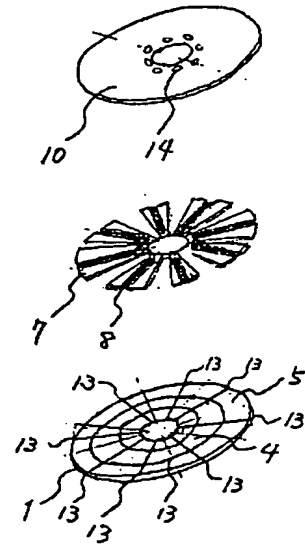




【図3】



【図4】



フロントページの続き

(72)発明者 野田 憲正  
京都府京都市南区東九条西明田町57 株式  
会社京都第一科学内

(72)発明者 勝木 幸治  
京都府京都市南区東九条西明田町57 株式  
会社京都第一科学内

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**